

**Partial English Translation of**  
**JAPANESE PATENT APPLICATION**

**Publication No. 45-19169B**

Page 1, left section, line 10 to line 12

[Detailed Description of the Invention]

The present invention relates to an improvement in a boron carbide manufacturing method.

⑩特許公報

④公告 昭和45年(1970)7月1日

発明の数 1

(全3頁)

④炭化硼素の製造方法

⑪特 願 昭40-21818  
⑫出 願 昭40(1965)4月15日  
⑬発 明 者 岩元貞幸  
横浜市戸塚区平戸町1156の1  
⑭出 願 人 電気化学工業株式会社  
東京都千代田区有楽町1の10  
代 表 者 野村与曾市  
代 理 人 弁理士 杉村信近 外1名

発明の詳細な説明

本発明は炭化硼素製造法の改良に関するものである。

炭化硼素の製造に当たり、従来一般に酸化硼素に還元剤として炭素材料を配合し、炭素抵抗炉、アーク炉等により2000℃以上の高温で還元炭化させる方法が用いられているが、いずれの場合においてもその製造には多大のエネルギー消費を伴うことが難点である。

このようなエネルギー消費の原因は原料である酸化硼素自体の加熱の際の性状による所が大である。

すなわち、酸化硼素は融点が約600℃の比較的低融点化合物であるため、反応温度に到達する以前において液状物となつて流動性を帯び、炭材と遊離した単離層を形成し易い。このために反応の円滑な進行を阻害し、そして高温による揮散損失をさえ生じるのみならず、遊離した粘潤な酸化硼素層が反応の進行と共に発生する一酸化炭素ガスの放出を不完全にし、電極付近の高温反応部に空洞を形成するために使用電力の有効利用を妨げる結果となり、多大のエネルギー消費の因をなす。

そしてこのような場合は、生成物が一帯となつた凝集物となり難く、分離した未反応炭素材が多く残されて品質収率の低下を来し、製品の歩留りを悪くする。

本発明者はかかる欠点を改善すべく研究の結果

本発明方法を見出すに到つたものである。

すなわち本発明は原料硼酸に炭素材を配合し、更に硼酸に対し、窒化剤としてジシアンジアミド、メラミンおよび塩化アンモンから選んだ分解温度

5 200℃以上の含窒素化合物の一種を、5～70重量%加えて混合し、これを700～800℃に予備加熱して炭素材、窒素硼素および酸化硼素からなる熔融混合物をつくり、さらにこれを炭化硼素の生成温度に加熱し反応させることを特徴とする炭化硼素の製造方法である。

以下本発明につき詳述する。

まず原料として硼酸を用い、これに窒化剤としてジシアンジアミド、メラミンおよび塩化アンモンから選んだ含窒素化合物ならびに所定量の炭材を配合した混合物を密閉炉にて予備加熱する。

この予備加熱工程において硼酸の1部は窒化剤と反応して窒化硼素を生成し、かつ同時に残りの硼酸は脱水されて酸化硼素となる。

この工程の進行の際、共存する炭材は硼酸でおおわれ、かつ上記窒化剤の分解により発生する還元性ガスによつて保護されるのでほとんど損失を生ずることはない。

この予備加熱工程で得られるところの窒化硼素および酸化硼素を含有した熔融混合物をそのまままたは特に好適には凝固させて粉碎したのちアーク炉中に投入し、2000℃以上の温度に加熱し反応させる時は、炭化硼素の生成温度に達するまで、硼素含有物と炭材との密着状態が良好に保たれ、従つて反応が速やかに進行し、電極下の反応部に熔融凝集し、これを冷却して炭化硼素の塊状物を得るわけである。

これを更に詳しく述べると予備加熱工程で硼酸と窒化剤とを反応させて生じた窒化硼素は、高温において安定であり、従つてアーク炉中で高温加熱する炭化硼素の生成反応工程の進行中、炉中心の高温反応部の周辺に生成する熔融未反応層中に分散分布してここに透気性に富んだ層をつくるので、炉中心部における還元反応により発生する一

3

酸化炭素を、容易に炉外へ抜け易くするとともに溶融主体物である酸化硼素が凝集して粘稠性液層を生成するのを防止し、さらに硼素含有物と炭材の分離を抑制するのに効果的に作用する。

従つて炭素材に対する酸化硼素および窒化硼素の接触状態が良好に保たれ、かつ、アークが安定するので炭化硼素生成反応が円滑に行われ、それによつて全反応期間は短縮され、酸化硼素の揮散損失並びに一酸化炭素ガスの吹出しによる飛散損失を最小限に抑えることができ、電力過剰消費を伴うことなく効果的な炭化硼素の製造が可能となる。

さらに上述のようにして、生成窒化硼素が含まれることの利点としては、反応を終了して冷却した後、生成物が炉より特に容易に取り出せることである。

すなわちこの窒化硼素は、炉内反応帯においては炭化硼素に変化するが、反応末端の比較的低温部では安定な固体の粉末状態において残存し、反応生成物が未反応原料乃至炉壁と粘結付着するのを防止する役目を果たすので冷却後、生成物塊を炉外に取り出す際に炉ライニングを損傷することなくまた未反応物からはほぼ完全に分離し、生成物塊の取扱いを極めて容易にする。

本発明では、上にのべた通り予備加熱工程で得られる溶融混合物中に、窒化硼素を生成するからこれを含む溶融混合物から炭化硼素を生成させる反応工程中その反応の進行に有利な状態を物理的に確保する意味で上記の窒化硼素が有効に作用するばかりでなく、さらに生成した窒化硼素自身はまた高温反応域において炭化硼素となり、そして反応域外においては炉壁の保護として役立ち、上記物理的效果と相俟つてその効果は極めて大なるものである。

窒化剤としてのジシアンジアミド、メラミンおよび塩化アンモンから選ぶ窒素化合物の添加量は何れも本発明において炭材と共に配合する硼酸に対し5~70% (重量) が適当であり5%以上では添加効果が認められず、又70%以上となると予備加熱中での窒化硼素の生成が添加量の割合に従つて増加することなく、窒化剤が有効に働かなくなるので経済的に好ましくない。

上記のジシアンジアミド、メラミン、塩化アンモンはその分解温度が200℃以上である点で有効である。この分解温度が200℃以下のもので

4

は揮発が多く好ましくない。

窒化剤を添加した混合原料を予備加熱する場合の加熱温度は700~800℃の範囲が好適である。そして500℃以下においては長時間加熱をしても窒化硼素が十分に生成せず、窒化剤が単に分解揮発して損失が多く、700℃未満でもなお充分でない。又800℃をこえる高温に加熱しても反応が効果的に進行するわけではなく無益に加熱コストが高くなるのみである。

加熱時間は原料の処理量によつて異なり、多量の場合程長時間を必要とするが、予備加熱終了時において、ほぼ原料重量の約1/2程度になるまで加熱するのが傾合である。

予備加熱工程において普通、凝集塊ができるので、その冷却後破砕してから炭化硼素生成反応温度に加熱することが望ましい。

以上の如くに本発明方法は原料としては酸化硼素に比べて安価な硼酸を窒化剤とともに特に有利に使用し、消費電力少なく、しかも収率の高い点で、効果的な炭化硼素の製造方法として有用度が高い。

以下に本発明の実施例を示す。

#### 実施例 1

硼酸1490g、炭材400g、ジシアンジアミド422gの混合粉末原料を800℃で40分間加熱し生成した凝集物を冷却後破砕し、次いで10KVAアーク炉中で2000℃以上に約50分間高温に加熱し、冷却後生成物を取り出し、緻密な金属光沢を持つ炭化硼素の単塊260gを得た。収率78.5%、生成物中の結合炭素2.6%、結合硼素76.5%そして生成 $B_4C$ 1kg当たりの消費電力量は40KWHであつた。

#### 実施例 2

硼酸1490g、炭材372g、ジシアンジアミド432gの混合粉末原料を実施例1と同様に加熱溶融し、炭化硼素240gを得た。

収率72.5%、生成物中の結合炭素21.7%、結合硼素78%、消費電力は42.6KWH/kg  $B_4C$ 。

#### 実施例 3

硼酸1490g、炭材372g、ジシアンジアミド507gの混合粉末原料を実施例1と同様に処理し炭化硼素230gを得た。

収率70%、生成物中の結合炭素21.5%、結合硼素78%、消費電力は45KWH/kg  $B_4C$ 。

5

6

## 実施例 4

硼酸1490g、炭材408g、ジシアンジアミド400gの混合原料を実施例1と同様処理し製品としての炭化硼素255gを得た。

収率77%、生成物中の結合炭素22.0%、結合硼素77.5%、消費電力は38KWH/kg B<sub>4</sub>C。

## 実施例 5

硼酸1490g、炭材396g、メラミン378gの混合粉末原料を実施例1と同一条件で加熱処理し、炭化硼素250gを得た。

収率75.5%、生成物中の結合炭素23%、結合硼素76.5%、消費電力45KWH/kg B<sub>4</sub>C。

## 実施例 6

硼酸1490g、炭材408g、塩化アンモン535gの混合粉末原料を実施例1と同一条件で加熱処理し240gの炭化硼素を得た。

収率72.5%、生成物中の結合炭素20%、結合硼素79%、消費電力47KWH/kg B<sub>4</sub>C。

本発明方法により得られる生成物はその大部分

が窒素0.3%以下で、炭素含有量もほとんどB<sub>4</sub>Cの理論値に近いものであり、金属光沢を持つ灰黒色を呈する緻密な塊状物で硬度測定によれば荷重100gでヌープ硬度2800~2900を示し、研磨材料として従来市販のものに比べて同等又はそれ以上の物性を示す。

## 特許請求の範囲

1 原料硼酸に炭素材を配合し、更に硼酸に対し、窒化剤としてジシアンジアミド、メラミンおよび塩化アンモンから選んだ分解温度200℃以上の含窒素化合物の一種を、5~70重量%加えて混合し、これを700~800℃に予備加熱して炭素け、窒化硼素および酸化硼素からなる熔融混合物をつくり、さらにこれを炭化硼素の生成温度に加熱し反応させることを特徴とする炭化硼素の製造方法。

## 引用文献

特 公 昭40-25048